Eco Technologies for Wastewater Treatment2012（その２）

6 月 25 日~27 日にスペイン・サンチアゴで開催された Eco Technologies for Wastewater Treatment2012（ecoSTP2012）に関する会議について、第 2 回目となる今回は、Economic and energetic aspects (経済性とエネルギー)、Greenhouse gases emission(温室効果ガス排出量)のセッションで紹介された研究成果を報告する。

この会議は、廃水処理が今後のグローバルな取組みによって直面する新しいプロセスと技術的課題について、排出物(量)、経済面および環境面での分析に関係する事象に対し、統合された視点を持ちながら、関係者が一緒になって検討していくことを目的としている。また、2007 年から 2011 年に文部科学省の補助により行われていた”NOVEDAR_Consolider project(21 世紀の下水処理プラントの構想)”を締めくくる会議でもある。

3. エネルギー自給自足型廃水処理

Ana Soares氏他、School of Applied Science(Cranfield University)

3.1　はじめに

従来の廃水処理の技術は、活性汚泥法の曝気のように施設の全必要電力(0.3～0.7kW/m^3)の 54～97%を占める大きなエネルギーを必要とする。また、2015 年までに全水域の水を“化学的および生物学的に良好な状態”を要求する欧州水枠組指令(Water Framework Directive : 2000/60/EC)を達成するために、廃水処理に必要となるエネルギーは、今後さらに増加することが予想される。欧州指令の施行は、現在の処理フローに対して追加のプロセス装置(粒状活性炭、オゾン、膜ろ過および逆浸透膜)が必要となるような、より強化された処理が求められる。他のマイナス要因として、運転コスト(OPEX : operational cost)、汚泥発生量とカーボンフットプリントが予想される。

過去 3～5 年の間に、廃水処理における“パラダイムシフト”の必要性によって、この分野への考え方にも変化があった。実用的な嫌気性プロセスを中心とする廃水処理が、持続可能な廃水処理システムへの最適な道筋として理解されてきた。

【パラダイムシフト】その時代や分野において当然のことと考えられていた認識や思想、社会全体の価値観などが革命的にもしくは劇的に変化すること。

嫌気的生物処理において、プロセス用空気は化学的酸素要求量(以下、COD)と生物化学的酸素要求量(以下、BOD)の除去には不要であり、有機物質のほんの 10～20%だけがバイオマスに消化される。つまり、好気的廃水処理プロセスと比較して、必要とされるエネルギーと発生する汚泥量の 2 つの低減効果が得られる。

嫌気的プロセス(粒状汚泥嫌気性膜反応槽：以下GanMBR)は、廃水処理プロセスの主流技術として提案されており、この技術はまた、栄養素の除去に対するイオン交換接触体の

適用時の固形物に起因する問題を解決できる。

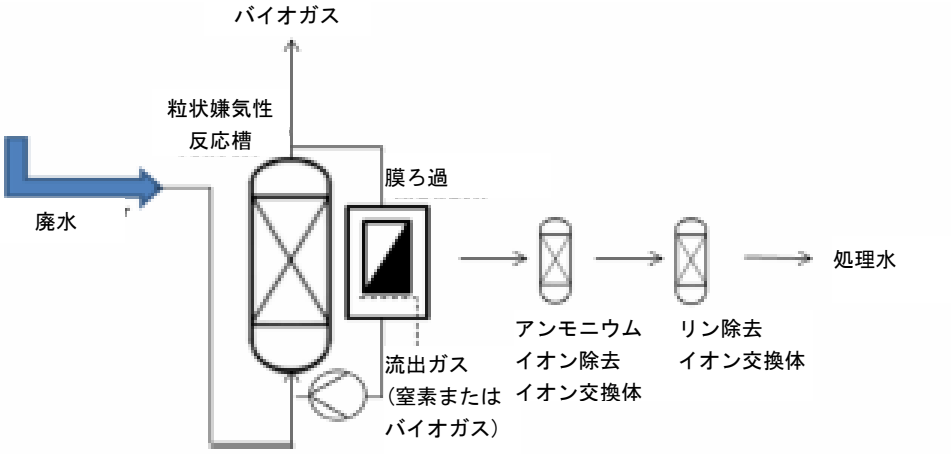
嫌気性菌に必要となる栄養素は、好気性菌の栄養素とは異なる。嫌気的処理に必要な栄養素は、活性汚泥プロセスまたは散水ろ床で必要される量よりも少ない。嫌気性菌の活性を満足させるのに必要となる窒素とリンの量は有機物負荷率によって変化し、一般的に、COD：窒素：リン＝350：7：1というような低負荷の条件が採用されてきた。最近の研究では、嫌気的処理プロセスは22～27%までリンの負荷を減少させることができるが、アンモニアの除去はできないことが実証されている。したがって、標準的な中程度の濃度を持つ廃水に対するGanMBR内の廃水中のアンモニアとリンの予測濃度は、25 mg NH_4^+/L and 5 mg P/Lとなる。これらの濃度でのイオン交換樹脂のベッドへの吸着が、栄養素の除去には最適であると考えられており、廃水処理におけるエネルギーの低減と中和能力そして低い栄養濃度の処理水にする最も実現可能な方法として考えられる。

本研究では、実際の廃水処理施設にて試験を行った2つのパイロット施設における運転条件と結果について報告する。そして、栄養素の除去を目的に計画した2番目のパイロット施設では、従来の廃水処理プロセスと比較して、エネルギーの自給自足性の達成と資源回収を可能としながら、厳しい基準に対する廃水処理を目的とした新しいフローを提案している。

3.2　材料および方法

(1)実験方法

実際の廃水処理施設にて、完全なパイロット施設を用いて、日量85リットルの廃水の処理を行った。GanMBRは、0.9m²の全ろ過面積と0.04m四方の公称細孔サイズを持つ副流式中空繊維膜(ZW10、GE社、ハンガリー) を組み合わせたBIOPAQ® UASBパイロット(PAQUES社、 オランダ)を使用した(図3-1参照)。



出典：ecoSTP2012 会議資料　Ana Soares 氏他、School of Applied Science(Cranfield University)

図3-1　パイロット施設の概念図

流出する窒素ガスは、膜の汚れの低減と混合効果の促進およびデッドゾーンを無くすためにタンク底部に取り付けられた拡散羽根から断続的に排出された。GanMBRには、パルプと紙の廃水を処理する実際のUASB反応槽から得られる35℃の28g浮遊物質/Lの粒状汚泥を採取した。パイロット施設の操作は、バイオマスを下水道の放流条件に順化させるために、周囲の廃水温度を8～20℃にしながらバッチ処理にて開始した。

試験開始から14日後、実際の下水処理施設からの一次セトラーの出口から毎日収集される下水をバイオ反応槽に連続的に供給した。流入する下水のCODは400～1000mg/Lであった。それから、副流の膜を装着し、透過物の除去を行った。透過物の分析は、COD、蒸発残留物と栄養素(アンモニウムイオンとリン)について行った。バイオガスの組成は、連続式分析計(BCPCO$_2$BioZGおよびBCPCH$_4$BioZG、BlueSens社、ドイツ)を使用して、メタンと二酸化炭素について計測を行った。廃水中に溶解したメタンの濃度は、Daviesらによって開発された方法に基づき計算した。

80mLの汚泥を封入した100mLの容器に注入した。その容器は分速300回転で15分間攪拌後、4℃まで冷却された。安定状態に達した後、頂部スペースの組成の分析をSERVOPRO 1440型注入式分析計(Servomex社、イギリス)を用いて実験室で行った。栄養素の除去を目的としたパイロット施設をEuraqua (イギリス)によって設立した。イオン交換物質は、物質のロスを防止するための0.2mmの小さな穴を持つ7リットルで内部の入口と出口に分散用の溝がある2つのpentair vinyl ester圧力シリンダーに設置された。筒状の容器が、70Lの処理水の供給と廃棄タンクと一緒に搭載された。最大5.5Lのアンモニア除去物質－ 天然のテクトシリケイトゼオライトを使用した。物質の飽和量に達したとき、2%塩酸溶液で物質を洗浄することによって再生を行った。

空のベッドの接触時間は、20分、40分、60分で試験を行った。

物質を使用したリンの除去は、リンを選択的に除去するハイブリッド陰イオン交換体、そしてそれは､水和酸化第二鉄(HFO)のナノ粒子内に基本的にポリメリック樹脂の陰イオン交換体とした。リンの除去物質(最大4.7L)は、5%塩化ナトリウム溶液で再生され、そして空のベッドは10分、20分、60分で試験を行った。

(2)分析方法

液体試料、製造メーカの取扱説明書に準じてMerck Spectroquant製セルテスト(Darmstadt, Denmark)を使用し、全CODおよび溶解性COD、アンモニアおよびリンの分析を行った。また、総懸濁固体量(TSS)は、APHA規格に記載されている標準的な方法によって求めた。

3.3　結果と考察

GanMBRパイロット施設に、全COD(TCOD)の平均濃度が577mg/Lおよび溶解状COD(SCOD)の平均濃度が156 mg/Lの中間強度で安定した廃水を実際の施設から供給した。廃水中の総懸濁固体量(TSS)は高く、その平均濃度は457mg/Lであった。(表1)

流入水のTSS含有量はGanBMRに対し、500mg TSS/Lの値以上に頻繁に上昇した。これは、おそらく、下水を処理する実際の廃水施設から供給に使用した廃水を持ってきたためである。しかしながら､GanBMRは固体を吸着することができ､そして平均濃度64mgTSS/LのGanMBR処理水は膜ろ過によって完全に除去された。さらに、TCOD除去も平均87%除

去できていた。GanMBRの効果は近年報告されている値に近かった。そして、GcanMBRは有機固形物を蓄積するため、50日ごとに洗浄する必要があった。

膜ろ過装置上のコロイド状固形物負荷を減少させるための持続可能なフラックスを維持させながら、膜の運転は内部ガスのパージ(運転時間の5~10%相当の時間)のエネルギーが少なくなるように管理した。

表3-1　嫌気性粒状汚泥膜反応槽の効果(TCOD、SCOD、TSSの除去)

	流入水	汚泥反応槽 処理水	GanMBR 処理水	除去率(%)
TCOD(mg/L)	577 (1000、202)	243 (355、145)	77 (52、109)	87
SCOD(mg/L)	156 (263、68)	110 (72、147)	-	-
TSS(mg/L)	457 (1500、100)	64 (100、42)	0 (0,0)	100

出典：ecoSTP2012 会議資料　Ana Soares 氏他、School of Applied Science(Cranfield University)

【備考】TCOD：総化学的酸素要求量、SCOD：溶解性化学的酸素要求量、TSS：全懸濁固形物

数値は平均値を示し、(　) 内の数値は、最大値と最小値を示す。

栄養素の除去を行うパイロット施設を、GanMBRの流体を利用して運転した。

その結果、3mgNH_4+/L のアンモニア濃度と 1mgP/L のリン濃度まで減少させるアンモニとリンの除去のためのイオン交換樹脂の適合性が実証された。(表 3-2)

表 3-2　廃水からの栄養素除去に対するイオン交換プロセスの代表例

化合物	流入濃度	樹脂容量	流速(処理水量)
アンモニア	＜　3mgNH_4^+-N/L	27～36gNH_4^+-N/kg	4～5×ベッド容量/h
リン	＜　1mgP/L	50～70gP/kg	8～10×ベッド容量/h

出典：ecoSTP2012 会議資料　Ana Soares 氏他、School of Applied Science(Cranfield University)

物質間の比較結果は、リン吸着材の容量がアンモニウムイオン吸着材の約2倍であったことを示した。両物質の再生は、15日ごとに行う必要があった。

3.4　結論

処理水の高い品質を維持する従来の活性汚泥処理に基づく廃水処理設備と比較較して、本研究で試験したフローシートは、汚泥発生量と使用するエネルギーの低減効果について確認できた。

また、エネルギーバランスとエネルギー回収の両方の達成は、膜の操作と GanMBR の処理水から溶解されたメタンの回収によって、さらに優れたシステムとなる可能性がある。

（参考資料）

・ecoSTP2012 会議資料　Ana Soares 氏他、School of Applied Science
(Cranfield University)

4. 部分硝化/anammox 反応時における NO と N_2O の生成と中間体の作用

Haydée De Clippeleir氏他、LabMET (Ghent University)

4.1　はじめに

アンモニア除去法は、部分硝化/anammox反応の一つの現象である。Anammox反応は、グラニュール(自己造粒微生物)の嫌気性層内で亜硝酸化へのアンモニアの部分酸化を行う嫌気性のアンモニウム酸化菌(以下、AerAOB)とその後にグラニュール内部の嫌気層での残留アンモニアと生成された亜硝酸を窒素ガスに変換するアナモックス菌(以下、AnAOB)の共同作用である。

生物化学的酸素要求量と窒素の比が3以下の廃水に対しては、アンモニア除去法は経済的に望ましい窒素除去技術であり、コストとエネルギー効率に加えてプロセスの持続可能性の点からも、さらに注目されている。

1キログラム(kg)のN_2Oは、100年間で発揮する温室効果ガス298kgのCO_2に相当するため、N_2O排出量は、廃水処理施設（以下WWTP）のCO_2のフットプリントに大きな影響を与え、NO_2とNOの排出は対流圏のオゾン層の形成し、酸性化を引き起こす原因となる。

最近、いくつかの研究では、窒素負荷の0.4～1.3%が、N_2Oとして排出されるアンモニアを除去するためのシステムを導入した施設から、N_2Oへの対処方法を報告している。

1段式の部分硝化/anammox反応時に排出されるNOは、通常0.01%の窒素負荷の範囲である。しかしながら、NOが形成された後、その低い水溶性のために容易に放出される。N_2OとNOの形成を予測することは、多くの要因と関係物質により複雑かつ困難である。その形成経路についての概略図を図4-1に示す。

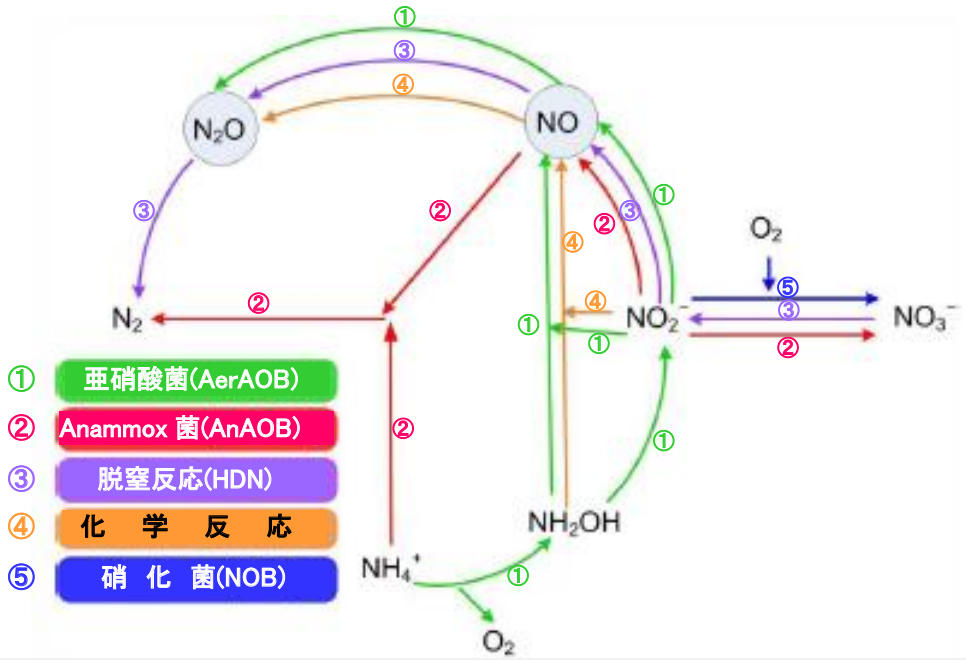


図 4-1　一酸化窒素(NO)と亜酸化窒素(N_2O)の形成における窒素の変化

出典：ecoSTP2012 会議資料　Haydée De Clippeleir 氏他、LabMET (Ghent University)

NO と N_2O の排出量の低減は、運転条件の最適化によって達成できるといわれているが、そのためには、現実的な条件下での NO と N_2O の生成経路の違いを理解する必要がある。本研究では、液相と気相中の全窒素種の挙動について、NO と N_2O の形成および中間体を結びつけることを目的として行った。

4.2　材料および方法

(1)実験方法

オーストリアのチロル州 Strass にある自治体の下水処理場(以下、WWTP)で、汚泥嫌気性廃水を処理する容量 500m^3 のシーケンス式バッチ反応槽(以下、SBR)のアンモニア除去法について本研究では調査した。

SBR は 6 時間のサイクルで運転を行い、その 75%は酸素が制限された反応期間とした。この反応期間中、反応槽には連続的に廃水を供給し、AerAOB とAnAOB の働きのバランスは、pH測定値に基づく供給制御によって得た。AerAOBによる好気的アンモニアの酸化によって1モルのNH_4^+イオンあたり1.9モルのH^+イオンが生成されるので、この最初の反応は、亜硝酸の生成と相関するようにpHの低下を引き起こす。したがって、このプロセスにおける曝気制御システムは、0.01単位の非常に厳しいpH間欠制御に基づいて行った。0.01単位のpHの減少が計測された場合、曝気を停止した。そして、AnAOBによって生成された亜硝酸の枯渇とアルカリ側への回復を行った。

さらに、pHの値がシステムの上限に達し、曝気が再開されるまで、アルカリ性の廃水を連続的に供給した。この制御の目的は、供給量が一定であるときに、0～0.7mgO_2/Lの溶存酸素(以下、DO)範囲となるように間欠的な曝気状態をつくりだすためである。

連続的な排出ガスの計測と泡の形成を可能にするために、直径0.3m、高さ2mの円筒が垂直に反応槽内部に配置され、所定の泡の流れ(0.7±0.6m/s)となるように円筒内部に吹き込んだ。したがって、排出されるガスの濃度は、少なくとも曝気期間中の最大ガス速度が1.8m/sとなるように希釈された。

気体のN_2O濃度は、光音響赤外マルチガスモニター（モデル1302、Brüel & Kjæ社、デンマーク）によって、3分間隔でオンライン測定を行った。

NOは化学発行法採用の大気汚染監視用NOx濃度測定装置（APNA350、堀場製作所、日本）にてオンラインで測定し、1分間隔で記録した。

溶解したN_2Oの測定は、0.45マイクロメートル(μm)でろ過した1mLの試料を7mLの真空容器(-900hPa)に入れ、ガスクロマトグラフ装置(GC-14B、島津製作所、日本)を用いて測定した。

液中のアンモニア濃度は、標準的な方法(Nessler法)に従って測定した。

亜硝酸と硝酸は、伝導率検出器を装備したイオンクロマトグラフ装置(761 compact 、Metrohm社、スイス)を用いて測定した。

ヒドロキシルアミン(NH_2OH)は、分光光度的に測定した。

実際の反応槽のN_2OとNO排出量は、制限された空気流の基準濃度に対して補正し、計測された温度と圧力条件から理想気体の法則よって得られるモル濃度に換算した。

空気流の測定された流速と円筒出口断面積(28cm^2)の積によって、流出ガスの流量を求めた。

4.3　結果と考察

一段式の部分硝化/anammox反応装置からのNO、NO_2とN_2Oの排出量を、図4-2に示すような2つの異なる負荷率(247kg-N/dと107kg-N/d)で測定した。両方の場合において、空気の流量、混合率やDO、pHおよび流入水の水質などの運転条件は、一定に保ち、供給速度によって負荷率だけを変更した。

両方の各処理の水質は、COD、NO_3-N, NO_2-N とNH$_4^+$濃度(単位は全てmg/L)が、それぞれ、高負荷率では、COD：632、NO_3-N：49、NO_2-N：1、NH$_4^+$：60となり、低負荷率ではCOD： 632、NO_3-N：48、NO_2-N：2、NH$_4^+$：15に変化した。

排出水にはかなりの無機炭素が含まれているので、低負荷率ではより少ないCO_2排出量となり、CO_2排出量は曝気の有無で急速に変化する。(図4-2の12:00~12:30が連続した曝気期間、13:15~16:30が断続的な曝気期間)

高負荷率において同様のpHとDOのパターンを得るために、曝気を頻繁に運転/停止させる断続運転を行った。

反応槽からは、3.5 kg N_2O-N/d、33 g NO-N /d、6.7 g NO_2-N/dのガスが排出され、それらは、1.4%、0.02%、0.003%の窒素負荷とそれぞれ相関があった。これらの排出量の変化は、文献から予想できる範囲内であった。

処理水のCODと窒素濃度は、低負荷率の方がより安定していたので、処理水中に増加する亜硝酸濃度と減少するアンモニア濃度が確認されたことから、N_2OとNO排出についても同じような相関が期待された。しかしながら、低負荷率において、より長い嫌気期間では、N_2O排出量は0.37kgN_2O/ d または0.3%の窒素負荷まで減少した。

より長い嫌気時間の場合、NOはより容易に除去され、排出量は、6gNO-N/dまたは0.01%窒素負荷まで減少した。安定した曝気流量がサイクル中に維持されたので、N_2OとNOの排出濃度の低下によって少ない排出量が達成できた。

アンモニア除去サイクル中の曝気は、AerAOBと関係する好気的条件におけるpHの低下と嫌気的条件におけるpHの上昇を測定することで制御を行った。

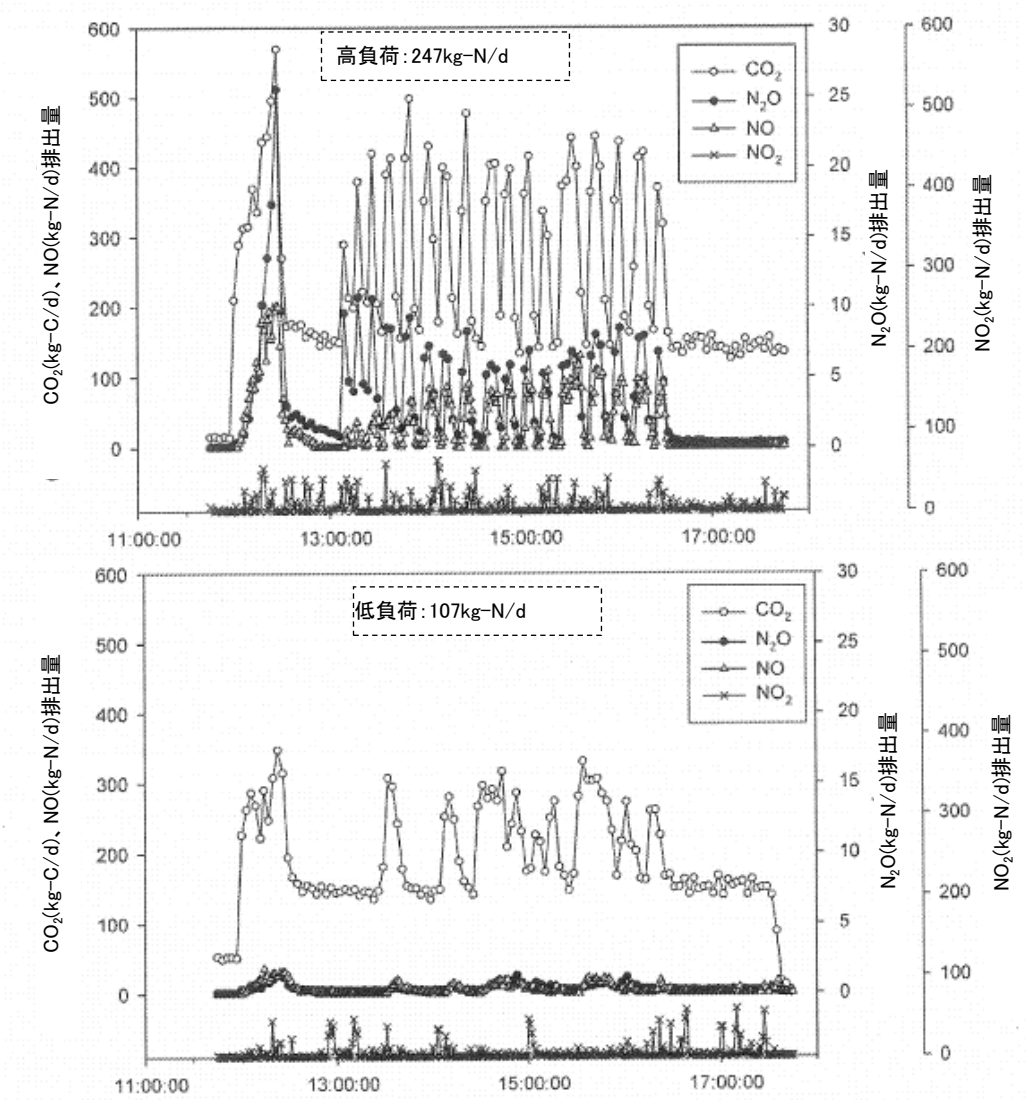
より少ない量の排出水が、2回目のサイクルで添加されるので、そのpHの上昇は長くそして高負荷率での最初のサイクルと比較して、25%長く嫌気期間が必要となったが、総曝気時間は、頻繁に運転/停止操作を行わなくても25%短縮できた。

NOとN_2Oは主に曝気期間中に排出されているので、短縮された総曝気期間は、N_2OとNOの排出量が、79%と50%とそれぞれ減少した理由としては不十分である。

NO_2排出量は曝気の影響を殆ど受けておらず、その排出量は0.005%窒素負荷の約2倍に増加した。NO_2の排出は液相中の亜硝酸濃度と強く関係しているので、小さな亜硝酸の変動は、N_2OとNOの少ない排出量の要因ではない。

両方の負荷において、CO_2の排出と比較してN_2OおよびNOの排出に遅れの期間があることが、サイクル初期の曝気開始間で認められた。(図4-2の12:00~12:30)

したがって、この排出量の減少が、NOとN_2Oの生成が最初から開始していなかったから生じたのか、またはこれが除去と気体/液体平衡状態形成の問題によるものかどうかが考えられた。高負荷時のN_2OとNOの大幅な動きによって、サイクル初期の2時間は、この問題に関係していることが考えられた(図4-3参照)。



出典：ecoSTP2012会議資料　Haydée De Clippeleir氏他、LabMET (Ghent University)

図4-2　CO_2、N_2O、NO、NO_2の排出量(上：高負荷、下：低負荷)

図4-3に示すとおり、安定期間(前のサイクルの終わり)に、酸素濃度は枯渇し気相中での排出は限られていた。しかしながら、NH_2OHのピーク(0.2%のNH_4^+の消費)に続くアンモニアの消費(1.2kg-N/d)は、酸素量(0.2mgO_2/L)の存在によって行われる。

アンモニアと亜硝酸濃度の減少と同時に、NH_2OHのピークはN_2O(液相と気相)とNO(気相)の濃度の影響を受けている。それは、それぞれ0.67 kg N_2O-N/dと0.001 g NO-N/dまたは56%と0.08%のNH_4^+消費率を示している(図4-3、表4-1参照)。

この段階では、例えば、硝化、脱窒、生物的または化学反応などのいくつかのメカニズムが作用している。さらに、3.1kg-COD/dのCOD除去率に関係するような第2の要因がその時点で確認されており、それは脱窒が最大1kg-N/dで行われていることを示していた。この脱窒反応は、わずかな酸素の存在(図4-3)が、従属栄養性脱窒期間中のN_2Oの還元酵素を阻害している可能性があるとき、N_2OとNOの排出の別の理由であるかもしれない。

脱窒率に基づけば、これは67%のN_2Oと0.1%のNOにそれぞれ対応している。

この状況では、無機栄養性NOからN_2Oへの変換は、酸素によって阻害されていないことも言及すべきであり、既知の従属栄養性脱窒の経路から逸脱するものである。

わずかに増加した硝酸(0.28kg-N/d)と減少した亜硝酸(0.08kg-N/d)を考慮すると、全て消費されたアンモニアが硝酸へと酸化させられて脱窒中にさらに減少させられたと考えることは妥当である。この段階でのいくつかの要因(AerAOB、AnAOBと脱窒)相互作用とそこでの酸素の効果は不明であったことから、これらのメカニズムを区別することは困難である。

サイクル初期の曝気開始と同時にNH_4^+のピークは、初期のNOとN_2Oの生成による増加が原因と考えられるが、NOの遅れ期間はたった15分だけであり、CO_2の排出には遅れが認められなかったにもかかわらず、気相中のN_2Oの排出は約30分の遅れを示している。N_2OとNO間の遅れ時間の違いは、水溶性の違いとNOからN_2Oの連続的な生成が考えられる。さらに、NOの排出量はNO_2の蓄積が開始された瞬間から開始している。(図4-3)アンモニアの酸化における、1.2から320kg-N/dへの初期の急激な増加は、NOの排出と液相に残された13%のN_2Oの生成に続くものである。(表4-1と図4-3参照)

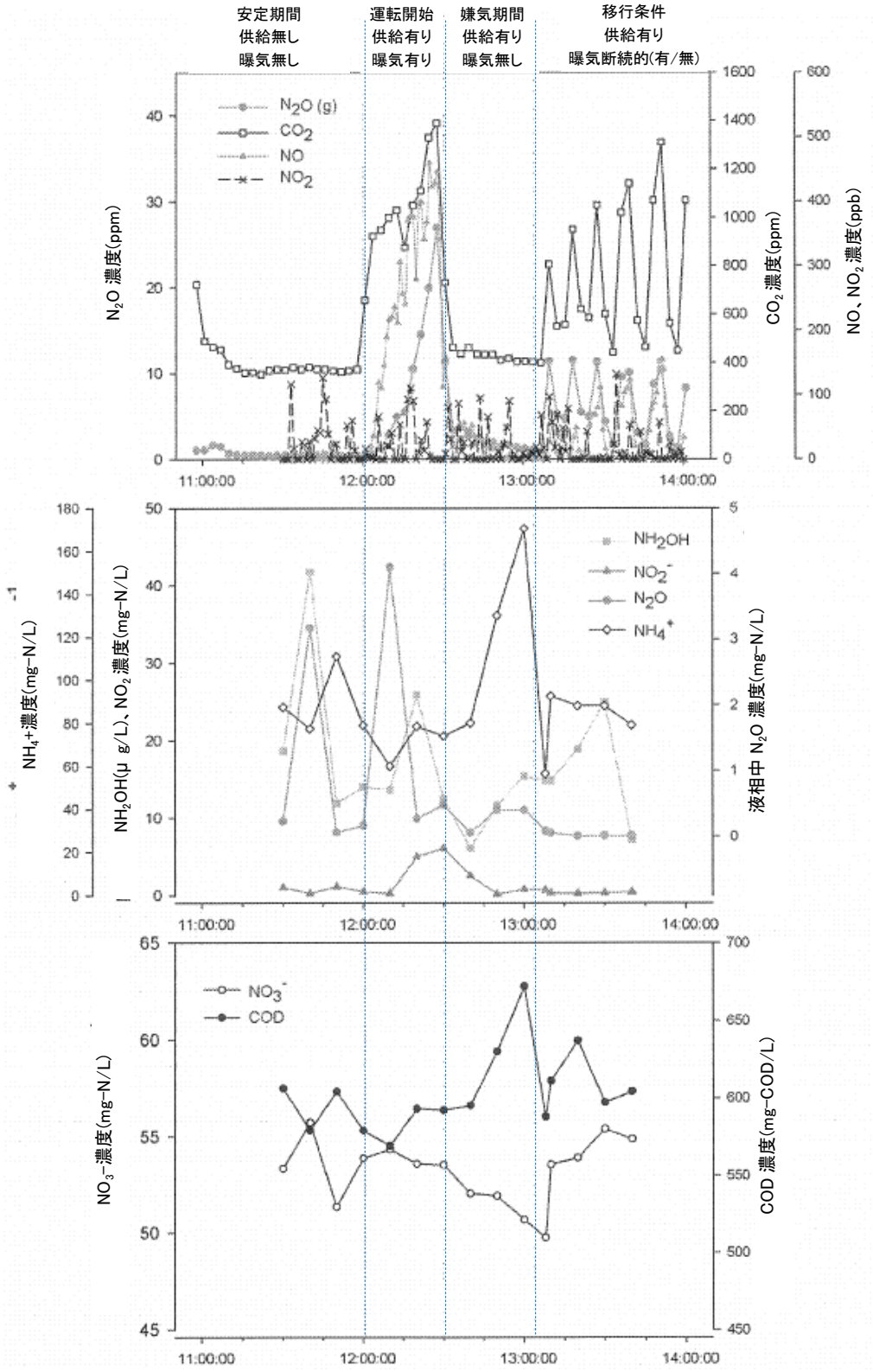
次の数分間の亜硝酸とNH_2OHの蓄積期間中に、NOが1.3倍、N_2Oが5.4倍となる増加が共に見られた(表4-1)。亜硝酸の濃度上昇は、すでにN_2OとNOの排出に対して強い相関があり、この研究における亜硝酸の蓄積は、排出時の高いピークとなって表れている。

文献等で、過度のアンモニア負荷は、高いアンモニアの酸化率と潜在的により多くのアンモニア酸化菌の原因となることが報告されており、我々の試験結果と一致している。

嫌気条件から好気条件に移行するときに、同様の効果が認められた。AerAOBは潜在的に、自己妨害を防止し、より効率的な導出エネルギーにより、蓄積されたNH_2OHをNO_2^-に加えてNOに酸化させる必要がある。つまり、この期間における急激なN_2O生成の増加は、NO_2^-とNH_2OHからNOの生成をもたらすAerAOBの働きによって説明できる。

供給だけが行われている嫌気期間の間、アンモニア濃度が徐々に増加していく限り、亜硝酸の消費は行われる。この期間中のアンモニアの消費率は、表4-3に示すとおり、サイクル中の他の期間(平均304kg-N/d)と同じくらいであったが、この終わりには290kg-N/dまで低下した。0から0.08mgO_2/Lへと増加しているDO濃度の結果としてNH_2OHの形成が見られた。また、NOとN_2O(液相と気相)濃度がそれぞれ、約0.8%と0.01%のアンモニウムの酸化率で安定しており、亜硝酸の消費量から、たった0.31kgNH_4^+/dの嫌気的アンモニウム酸化率が得られた。そして、存在する酸素によって、アンモニアの好気的酸化がAnAOBの働きとの組み合せによって行われているはずである。

急な運転/停止の曝気条件において、その移行期間の間(6分間の曝気、6分間の停止の繰り返し)、DOのレベルは急激に増加(0.7mgO_2/Lまで)増加した。さらに、連続するアンモニアの供給によって、高いアンモニア濃度(74mg-N/Lではなく170mg-N/L)で好気的酸化は開始しなければならなかった。酸素が存在していた時点から、好気的アンモニアの酸化は、サイクルの開始時よりもいくぶん高い335mg-N/dの全アンモニアの酸化によるピークを示した。NH_2OHの蓄積とNOおよびN_2Oの排出は、NOの酸化と還元の両方の結果の可能性が考えられる。



出典：ecoSTP2012 会議資料　Haydée De Clippeleir 氏他、LabMET (Ghent University)

図4-3　　高負荷時におけるサイクル初期の各成分の変化

上：CO_2、N_2O、NO、NO_2濃度(制限された空気量)

中：中間物質(NO_2^-とNH_2OH)、NH_4^+とN_2O濃度(液相中)

下：溶存酸素(DO)、NO_3^-とCOD濃度(液相中)

アンモニアのピークと嫌気から好気条件への移行は、重要なNH_2OHの可用性がNOの酸化的生成に寄与する。一定状態で残された液相中の全窒素化合物がNH_2OH濃度を期待するので、NH_2OHの可用性はNO排出量の増加と関連づけることができる。なお、NOの低い水溶性によって、その後に増加したN_2Oの生成は抑制されている。

表4-1　アンモニア除去サイクルにおける試験条件と各成分の変化(高負荷時)

条　件			NH_4^+	蓄積速度(NH_4^+の消費率　%)					
供給	曝気	溶存酸素 DO	Rv (kg-N/d)	NO_2^-	NH_2OH	N_2O (液相)	N_2O (気相)	NO	Total
無し	無し	0.2	1.2	—	0.2	29.4	26.7	0.08	56
有り *	有り	0	320	—	—	0.1	0.7	0.03	0.8
有り **	有り	0	312	0.2	0.001	—	4.3	0.04	4.6
有り	無し	0 0.1	304	—	—	0.001	0.8	0.01	0.8
有り	断続	0 0.7	308	—	0.0001	—	1.6	0.004	1.6

*最初の10分間：廃水の供給と曝気、**次の10分間：廃水の供給と曝気

我々の研究において、AerAOBはNOとN_2Oの排出に大きく関与している。嫌気条件から好気条件への変更は、図4-3に示すように、常にNO、N_2Oの生成を増加させ、これらの排出量はNH_2OHおよびNO_2-の蓄積と相関があり、NO_2-の蓄積が見られたときに、最も大きい排出量のピークが測定された。さらに、図4-3におけるサイクルの開始と移行期間の開始のアンモニア酸化率のピークでは、NOとN_2Oの排出量も増加している。

しかしながら、測定結果からは、直接にNOがNH_2OH（前方経路）から、または亜硝酸を経て製造されたかどうかまでは明確にできなかった。NH_2OHの蓄積が見られた両ケースのように、これらの測定値は、好気的条件でのNH_2OH濃度とこれら有害ガスの排出の関係を示している。これは、非常に動的な条件下では、硝化と脱窒がプロセス内での第2の役割を果たしたときに、NO、N_2Oの生成は、図4-1に示すようなNH_2OHルートによる可能性が高い。これは一時的なNH_2OHの蓄積（NO_2-蓄積に加えて）が、一段式の部分硝化/anammox反応によってNOとN_2Oの排出量を低減するための運転面での戦略に役立つ可能性を示している。

4.4　結論

上記から、結論として以下の4つのことが得られた。

(1)嫌気性アンモニアの酸化率のピークを示すような嫌気と好気的条件の移行条件の多さは、一段式の部分硝化/anammox反応中のNOとN_2Oの排出量増加に寄与する。

(2)運転サイクルの開始時のみ、システム内に瞬時に蓄積されたNO_2-によって、NOとN_2Oの排出は急激に増加した。

(3)NOとN_2Oの排出量のピークはNH_2OHの蓄積を伴っていた。
したがって、NH_2OHからのNOとN_2Oは生物学的または化学反応的生成が、一段式の部分硝化/anammox反応中の排出に対して最も重要であると考えられた。

(4)より安定した状況での運転とNH_2OHと亜硝酸の蓄積の抑制が、NOとN_2Oの排出量を低減させるためには重要となる。

(参考資料)

・ecoSTP2012 会議資料　Haydée De Clippeleir 氏他、LabMET (Ghent University)